NTP 喷射系统再生柴油机颗粒捕集器的试验研究

施蕴曦　蔡忆昔　李小华　陈亚运　李弘扬　郑益

（江苏大学 汽车与交通工程学院，江苏 镇江 212013）

摘　要：以氧气为气源，利用自行设计的低温等离子体（Non-thermal Plasma，NTP）喷射系统，进行了不同温度下的 DPF 再生试验研究。结果表明，氧气经 NTP 发生器放电后产生具有强氧化性的活性物质 O_3、O，能够实现对 PM 的分解，生成 CO 和 CO_2；随着试验温度的升高，CO 物质的量呈整体下降的趋势，CO_2 和 CO_x（CO 和 CO_2）物质的量均呈先升高后降低的趋势；试验温度为 80℃时，DPF 的背压下降最快，再生效果最为显著，且内部温度及温度梯度均远小于 DPF 的使用极限，有利于 DPF 的使用寿命。NTP 技术在不加催化剂的条件下，实现了相对较低温度下的 DPF 再生，与传统的再生方法相比，体现出了该再生方法的优越性。

关键词：低温等离子体；柴油机颗粒捕集器；再生；氧气；温度

中图分类号：TK421⁺.5　　　　文献标识码：A

Experimental Study on DPF Regeneration Based on Non-thermal Plasma Injection System

Shi Yun-Xi　Cai Yi-Xi　Li Xiao-Hua　Chen Ya-Yun　Li Hong-Yang　Zheng Yi

(*School of Automotive and Traffic Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang, Jiangsu 212013, China*)

Abstract: By using a self-designed Non-thermal Plasma (NTP) injection system, an experimental study of the regeneration of DPF was conducted at different temperatures, where oxygen as the gas source. The results revealed that PM can be decomposed to generate CO and CO_2 by these active substances O_3、O which was generated through the discharge reaction of NTP reactor. With the increasing of test temperature, the mole of CO shows an overall downward trend, while the mole of CO_2 and COx (the sum of CO and CO_2) increase first and then decrease. When the test temperature is 80℃, the backpressure of DPF decreases fastest and the regenerative effect is remarkable. The temperatures and temperature gradients at any position of DPF are far lower than serviceability limit. DPF can be regenerated by NTP technology without any catalyst at a lower temperature. Compared with the traditional regeneration method, the NTP technology has its superiority.

Keywords: Non-thermal Plasma；DPF；Regeneration；Oxygen；Temperature

0 引　言

柴油机凭借热效率高、燃油经济性好、可靠性高、使用寿命长等优点，被广泛应用于工农业生产和交通运输等领域[1-2]。但柴油机对大气污染的分担率也在逐步升高，如何高效合理地降低柴油机排放已成为人们日益关注的焦点。柴油机的主要污染物有氮氧化物（NOx）和颗粒物（Particulate Matter，PM），尤其是 PM 排放，严重破坏环保安全，对人体健康也构成了巨大的威胁[3-4]。2013 年 9 月，国务院发布了“史上最严厉”的《大气污染防治行动计划》，该计划要求到 2017 年全国地级以上城市可吸入颗粒物浓度比 2012 年下降 10%。由此可见，严格控制柴油机 PM 排放已成当务之急。目前应用最广泛的 PM 净化技术是采用柴油机颗粒捕集器（Diesel Particular Filter，DPF）技术，但随着 PM 捕集量的增加，DPF 压降增加，达到一定程度后会影响柴油机的正常运行，故 DPF 技术中的关键问题为捕集器的再生问题[5-6]。

DPF 的再生通常包括主动再生和被动再生。主动再生利用外加能量使 DPF 内部温度达到 PM 氧化燃烧所需温度，通常需达到 650℃以上。主动再生的

基金项目：国家自然科学基金项目（51176067）；江苏省高校优势学科建设项目（PDPA）

方法较多，如电加热、微波加热和喷射燃料燃烧加热等，但这类再生方法存在能耗大、成本高、载体结构易产生热损坏等问题[7]。被动再生是指不通过外部辅助的方式提高排气温度，达到再生的最低燃烧温度，进而完成再生。被动再生主要包括在燃油中添加催化剂，降低再生需要的最低燃烧温度或者通过加装氧化催化器方式生成 NO_2，通过 NO_2 氧化 PM 实现 DPF 再生。被动再生存在催化剂硫中毒和再生效率低等问题[8-9]。

低温等离子体（Non-thermal Plasma，NTP）技术是一种新型的工业去污手段，所产生的活性物质可使常规条件下很难实现的化学反应得以启动，具有使用范围广泛、转化效率高、耗能低、无二次污染等优势，有可能成为一种新型的柴油机后处理技术手段[10-12]。将NTP技术运用于DPF再生，是近年来DPF再生方法研究的热点之一。

本文以氧气为气源，利用自行设计的NTP喷射系统，对已捕集PM的DPF进行再生试验研究。探讨了NTP技术辅助再生DPF的化学反应机理，分析了不同温度对PM氧化分解和DPF再生效果的影响，并研究了DPF的内部温度及温度梯度的变化，为NTP 技术再生DPF的进一步研究提供依据。

1 试验系统与方法

试验装置主要由 NTP 喷射系统、氧气供给系统、电学参数测量系统、DPF 再生系统 4 部分组成，如图 1 所示。

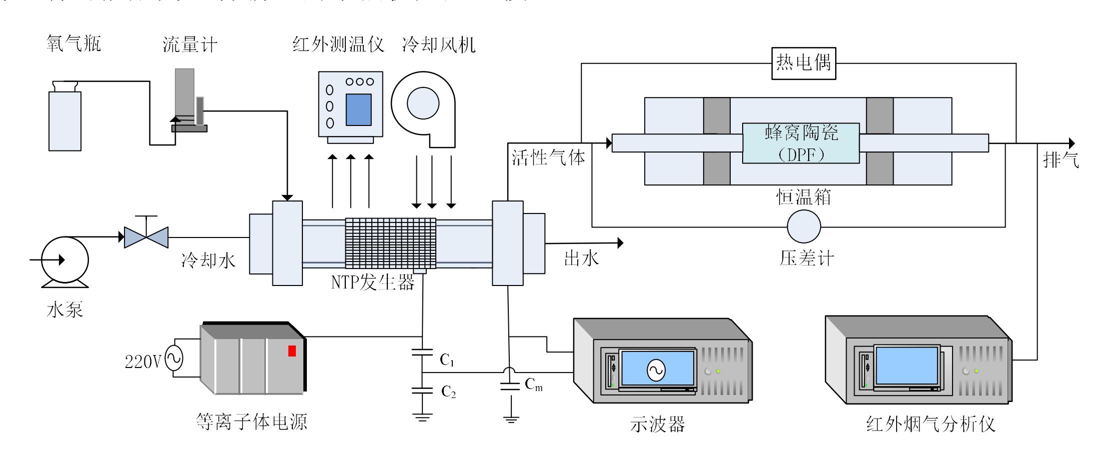


图 1　试验系统示意图

Fig.1　Experimental system sketch

NTP 喷射系统包括 NTP 发生器、水冷装置、风冷装置和温度测量装置。NTP 发生器为同轴圆柱结构：内电极采用外径为 32mm 的无缝不锈钢管；阻挡介质采用内径为 36mm、壁厚为 2mm 的石英管；外电极采用轴向长度为 100mm 的不锈钢网，紧贴于石英管外壁；放电气隙为 2mm。水冷装置包括水泵、传输管路和控制阀，管路中通以冷却水；风冷装置为冷却风机；温度测量装置为 TASI 红外测温仪，用于监测 NTP 发生器放电区表面温度，精度为±1℃。氧气供给系统由氧气瓶、传输管路、控制阀和转子式流量计组成，流量计用于监测气体流量。电学参数测量系统由低温等离子电源、通电电路和 TDS3034B 数字示波器组成。其中，低温等离子电源采用 CTP-2000K 智能电子冲击机，工作电压为 0～25kV，频率为 7～20kHz 连续可调；电路中分压电容 C_1=47pf，C_2=47nf，传输电荷测量电容 C_m=0.47μf；TDS3034B 示波器的采样频率为 50MHz，输出波形平均次数设定为 250 次，利用 TekP6139A 高压探头测取放电电压和放电频率。DPF 再生系统包括恒温箱、压差计、热电偶和红外烟气分析仪 Photon 等。恒温箱温度可控，将已捕集 PM 的 DPF 放置其中。DPF 的材料为堇青石，技术参数列于表 1 中。压差计用于测量试验过程中DPF两端的背压变化，Photon 用于测量 PM 氧化生成的 CO 和 CO_2 的浓度，热电偶用于用于测量 DPF 的内部温度。

图 2 为热电偶在 DPF 内部的位置分布示意图，分别用 0~13 标识各点位置。热电偶采用 K 型，量程为 0~1200°C，尺寸为 Φ0.48×1500mm。由图 2 可见，试验中测取了 DPF 不同轴向位置和不同径向位置的温度，基本可以反映出 DPF 内部温度的变化。图 3 为为 DPF 载体结构示意图。

试验时，控制氧气流量为 5L/min。开启低温等离子电源，调节放电电压为 20kV、放电频率为 9kHz。由于活性物质的浓度受 NTP 发生器表面温度影响较

大[13]，通过调节风机的风量和冷却水的流量以控制NTP发生器表面温度，保持其表面温度为90℃。氧气经NTP发生器高压放电后，产生活性气体，通入已加热至试验温度的DPF中进行反应，测取相关试验数据。恒温箱的温度即为试验温度，在不同的试验温度下，通入活性气体开始计时，试验均进行4小时。

表1　DPF主要技术参数

Table 1　DPF specifications

名称	参数
直径 D_D / mm	76
高 H_D / mm	152
孔密度/ cpsi	100
壁厚/mm	0.46±0.04
化学成分	SiO_2: 50.9±1.5% Al_2O_3: 35.2±1.5% MgO: 13.9±1.5%

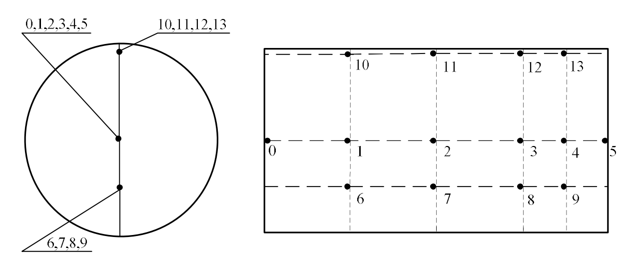
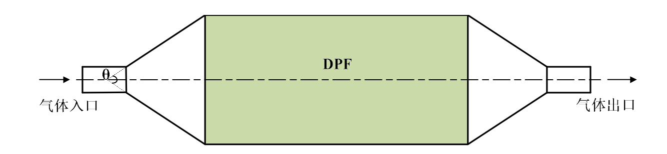


图2　DPF内部热电偶位置分布示意图

Fig.2　The distribution of thermocouples in DPF



注：θ为DPF载体的扩张角，θ=76.6°C。

图3　DPF再生载体结构示意图

Fig.3　Schematic diagram of DPF regeneration carrier

2 NTP辅助再生DPF化学反应机理

氧气经NTP发生器放电击穿后产生具有强氧化性的活性物质 O_3、O，其化学反应模型如式(1)～式(3)所示[14-15]。

$$e+O_2\rightarrow e+O_2(A^3\Sigma_u^+)\rightarrow e+O(^3P)+O(^3P) \quad (1)$$

$$e+O_2\rightarrow e+O_2(B^3\Sigma_u^-)\rightarrow e+O(^3P)+O(^1D) \quad (2)$$

$$O+O_2+M\rightarrow O_3+M \quad (3)$$

放电过程中臭氧的合成通常认为经过两个步骤。第一步为微放电产生的荷能，电子离解氧分子而形成新生态的氧原子，如式(1)、式(2)所示；第二步则为这些氧原子自由基参与三体反应合成臭氧，如式(3)所示，M为参加反应的第三种物质。

柴油机排气PM主要由未燃的炭烟(Soot) 、表面上吸附的有机可溶性物质(SOF)和无机盐三部分组成。利用NTP发生器产生的活性物质可分解转化PM中的Soot 及SOF。目前的研究认为, 可确定的化学反应动力学模型如式(4)～式(9)所示。

$$O+HC\rightarrow RO_2，RO，OH \quad (4)$$

$$O_3+SOF\rightarrow CO(CO_2)+O_2+H_2 \quad (5)$$

$$C+O\rightarrow CO \quad (6)$$

$$C+2O\rightarrow CO_2 \quad (7)$$

$$C+O_3\rightarrow CO+O_2 \quad (8)$$

$$C+2O_3\rightarrow CO_2+2O_2 \quad (9)$$

NTP发生器产生的活性物质首先与PM表面的SOF(主要为HC)碰撞，产生气态的CO、CO_2及H_2O，如式(4)、式(5)所示，从而使附着在soot表面的SOF剥离；当活性物质与PM中心的soot接触时，发生化学反应，生成CO、CO_2, 如式(6)~式(9)所示，从而实现 PM 的分解。由式(4)~式(9)可见，活性物质与PM反应主要产物为CO和CO_2，对CO、CO_2的监测可表明PM氧化分解反应进行的程度。

3 试验结果及分析

3.1 温度对PM分解的影响

分别在不同的试验温度下进行了DPF的再生试验，CO、CO_2的体积分数随时间的变化关系如图4和图5所示。

由图4和图5可见，当试验温度为17℃和40℃时，CO的体积分数随着反应的进行先急剧升高后基本保持平稳，CO_2的体积分数随着反应的进行先升高后下降。当试验温度为 60℃、80℃、100℃时，CO的体积分数整体呈两个阶梯状上升的趋势：第一个阶梯出现在反应起始时，CO的体积分数急剧地上升后基本保持平稳且略有下降；第二个阶梯出现在80min~120min，CO的体积分数先后出现急剧上升的趋势，后均保持平稳状态。CO_2的体积分数随着反应的进行先急剧地升高后保持平稳且略有下降，在80min~120min时先后出现急剧下降的趋势。通过观察可以发现在 60℃、80℃和 100℃的试验温度下，CO和CO_2的体积分数在同一时刻发生骤变。当试验温度为150℃、200℃、250℃和300℃时，CO和CO_2的体积分数均呈先急剧升高后缓慢下降的趋势。

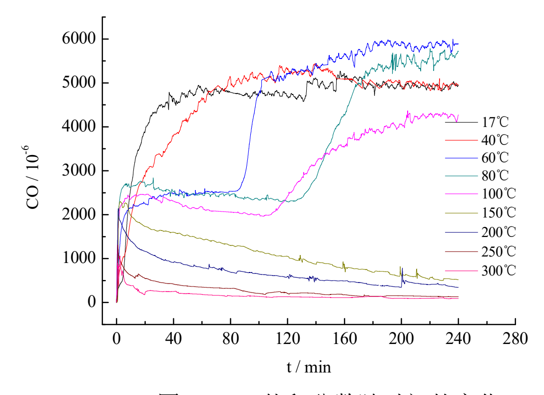


图 4　CO 体积分数随时间的变化

Fig.4　Concentration of CO vs. time

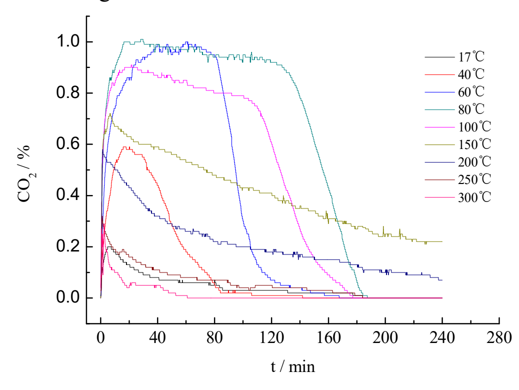


图 5　CO_2 体积分数随时间的变化

Fig.5　Concentration of CO_2 vs. time

3.2 温度对 DPF 再生效果的影响

对图 4 和图 5 中的曲线进行积分计算后，得出不同试验温度下 CO、CO_2 物质的量的变化，计算方法如式(10)和式(11)所示：

$$n(CO)=\int c_1 \cdot tdt \cdot v/V_m \qquad (10)$$

$$n(CO_2)=\int c_2 \cdot tdt \cdot v/V_m \qquad (11)$$

式中，c_1、c_2 分别为 CO、CO_2 的体积分数；v 为气体的流量；V_m 为气体摩尔体积。本实验中 v=5 L/min，V_m=22.4L/mol。

PM 分解得越多，则表明 DPF 再生的越好，而 PM 分解的主要产物为 CO、CO_2，故 CO、CO_2 总的物质的量可作为评价 DPF 再生效果的指标，用 CO_x 表示。CO、CO_2 和 CO_x 的物质的量随温度的变化如图 6 所示。由图 6 可见，当温度小于 80℃时，随着温度的升高，CO 物质的量呈下降的趋势，CO_2 物质的量呈升高的趋势。这是因为 CO 的生成热较低，CO_2 的生成热较高，低温下式(6)、式(8)为主要反应。随着温度的升高，式(7)、式(9)的反应加强，同时式(6)、式(8)的反应减弱，故 CO 物质的量下降，CO_2 物质的量上升。当温度大于 80℃时，CO 和 CO_2 物质的量均呈持续下降趋势。这是因为 O_3 在高温下会发生分解反应，随着温度的升高，O_3 的分解反应加剧，参加氧化反应的 O_3 越来越少，所以 CO 和 CO_2 物质的量均呈持续下降趋势。随着温度的升高，CO_x 物质的量呈增大后减小的趋势，这是因为 CO_2 的产量远高于 CO，所以 CO_x 与 CO_2 物质的量变化趋势一致。当试验温度为 80℃时，CO_x 物质的量最大，可见，此温度下 PM 氧化分解最为完全。

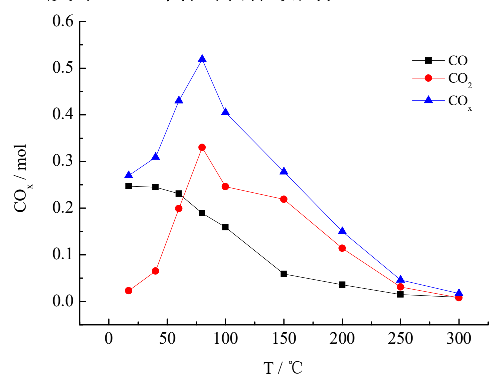


图 6　CO、CO_2 和 COx 物质的量随温度的变化

Fig.6　Concentration of CO、CO_2 and COx vs. temperature

图 7 为不同试验温度下 DPF 的背压随时间的变化。由图 7 可见，当试验温度为 17℃、40℃时，DPF 的背压略有降低，表明 PM 氧化速率缓慢。当试验温度为 60℃、80℃、100℃时，DPF 的背压下降趋势明显且下降速度快，表明氧化反应比较剧烈，氧化速率快。当试验温度 150℃、200℃、250℃和 300℃时，DPF 的背压下降趋势渐缓，PM 氧化速率减缓。通过比较可见，当试验温度为 80℃时，DPF 的背压下降最快，且再生反应进行 120 min 后，DPF 的背压已降至最小值，基本恢复到洁净 DPF 的背压。

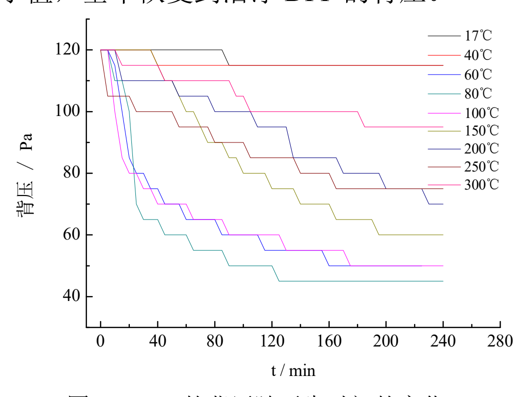


图 7　DPF 的背压随再生时间的变化

Fig.7　The backpressure of DPF vs. time

3.3 DPF 内部温度随时间的变化

图 8 和图 9 分别为试验温度为 80℃时 DPF 内部轴向温度和径向温度随再生时间变化的曲线。从图 8 和图 9 可见：（1）DPF 内部各点温度均在 180℃以下，远低于 DPF 的最高使用温度，可以保证 DPF 的使用寿命。（2）轴向各点及径向各面均先后出现温

度峰值，随着气体来流方向，PM 氧化的位置从上游向下游移动。（3）最高温度出现在测点 3 位置处，这是由于 DPF 上游的 PM 氧化反应放出的热量随气体流动传送到下游，热量在 DPF 下游累积，而测点 4 和测点 5 靠近气体出口处，热量损失大，所以在 DPF 中后部温度出现最大值。

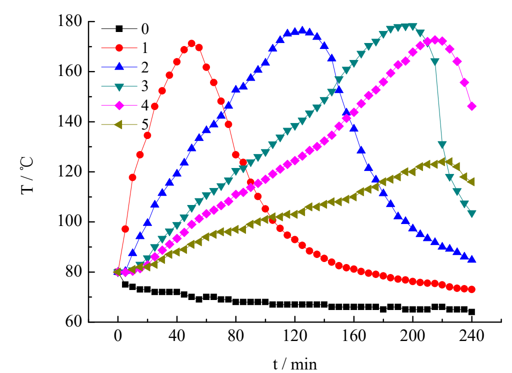


图 8　DPF 轴向温度随时间的变化

Fig.8　The variation of DPF axial temperature vs. time

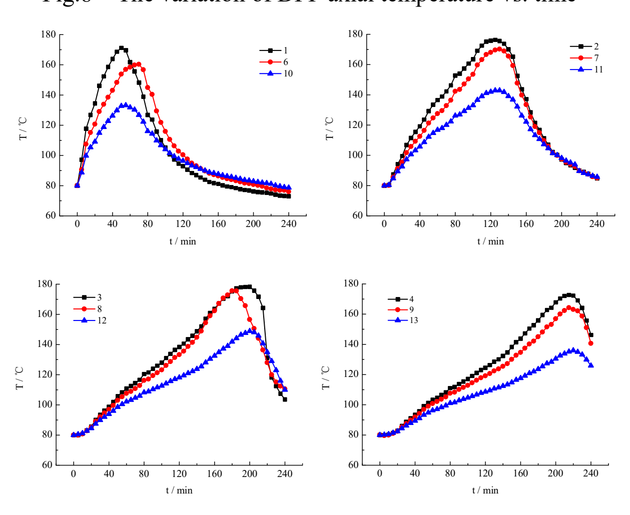


图 9　DPF 径向温度随时间的变化

Fig.9　The variation of DPF radial temperature vs. time

3.4 DPF 内部温度梯度随时间的变化

DPF 各位置的最高温度相差不大，但 PM 的氧化界面是从 DPF 的上游向下游移动，因此会产生轴向的温度梯度。经计算可知，DPF 中轴线上出现轴向最大温度梯度。图 10 为试验温度为 80℃时 DPF 中轴线上温度梯度随时间的变化。由图 10 可得，DPF 的轴向最大温度梯度出现在测点 3 与测点 4 之间，其值为 27.21℃·cm^{-1}，出现在 DPF 中后部。

图 11 为试验温度为 80℃时 DPF 在再生过程中径向温度梯度随时间的变化，选取的界面为拥有最大径向温度梯度的测量界面。由图 10 可见，最大径向温度梯度出现在 1-6-10 界面，位于测点 6 和测点 10 之间，其值分别为 20.24℃·cm^{-1}。对比图 10 和图 11 中最大轴向温度和最大径向温度可知，载体 A 最大温度梯度为 27.21℃·cm^{-1}。温度梯度保持在 35℃·cm^{-1} 以下不会导致 DPF 热应力损伤[16]，DPF 的温度梯度小于 DPF 温度梯度限值，这对 DPF 的寿命是非常有意义的。

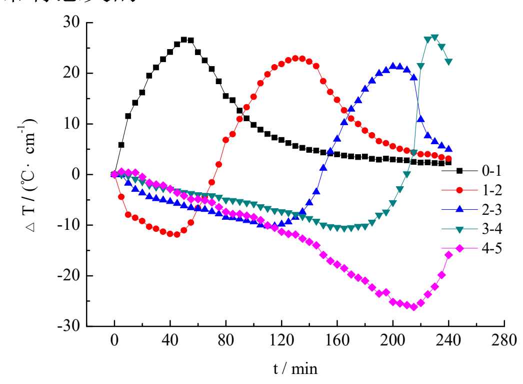


图 10　DPF 轴向温度梯度随时间的变化

Fig.10 The variation of DPF axial temperature gradient vs. time

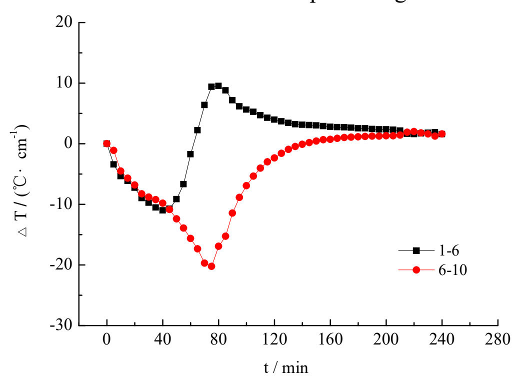


图 11　DPF 径向温度梯度随时间的变化

Fig.11 The variation of DPF radial temperature gradient vs. time

4 结 论

本试验以氧气为气源，利用自行设计的 NTP 喷射系统，进行了不同试验温度下的 DPF 再生试验。在深入探讨 NTP 技术辅助再生 DPF 的化学反应机理的基础上，分析了不同温度对 PM 氧化分解和 DPF 再生效果的影响，并研究了再生过程中 DPF 内部温度及温度梯度的变化，结论如下：

1) 氧气经 NTP 发生器放电后产生具有强氧化性的活性物质 O_3、O，能够实现对 PM 的氧化分解，生成 CO 和 CO_2。

2) 随着试验温度的升高，CO 物质的量呈整体下降的趋势，因而较低的温度有利于 CO 的产生。CO_2 和 CO_x(CO 和 CO_2) 物质的量均呈先升高后降低的趋势。在试验温度为 80℃时，CO_2 和 CO_x 物质的量达到最大值。

3) 当试验温度为 17℃、40℃时，DPF 的背压略

有降低；当试验温度为 60℃、80℃、100℃时，DPF 的背压下降趋势明显且背压下降速率快；当试验温度 150℃、200℃、250℃和 300℃时，DPF 的背压下降趋势渐缓。试验温度为 80℃时，DPF 的背压下降最快，再生效果最好。与传统的再生方法相比，NTP 技术在不加催化剂的条件下，实现了相对较低温度下的 DPF 再生，体现出了该再生方法的优越性。

4) 当试验温度 80℃时，DPF 内部各位置的温度远低于 DPF 的最高使用温度，且 DPF 的轴向和径向温度梯度均小于 DPF 温度梯度极限，这对延长 DPF 的寿命具有重要的意义，为 NTP 技术再生 DPF 的安全性提供了试验依据。

参考文献

[1] Jian Zhuang, Xinqi Qiao, Jinlong Bai, et al. Effect of diesel from direct coal liquefaction–biodiesel blends on combustion，performance and emission characteristics of a turbocharged DI diesel engine [J]. Fuel Processing Technology, 2014, 123: 82–91

[2] Zhou J H, Cheung C S, Leung C W. Combustion, performance and emissions of a diesel engine with H_2, CH_4 and H_2-CH_4 addition [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2014, 39(9) : 4611–4621

[3] Bensaid S, Caroca C J, Russo N, et al. Detailed Investigation of Non-Catalytic DPF Regeneration [J]. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 2011, 89: 401-407

[4] Chen K, Martirosyan K S, Luss D. Soot Combustion Dynamics in a Planar Diesel Particulate Filter [J]. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2009, 48 (7): 3323–3330

[5] Walter K. Diesel Engine Development in View of Reduced Emission Standards [J]. Energy, 2008, 33：264-271

[6] 孟忠伟，郭栋，宋蔷，等. 壁流式柴油机颗粒过滤体捕集性能的实验研究 [J]. 工程热物理学报，2008，29（1）:171-173
MENG Zhongwei, GUO Dong, SONG Qiang, et al. Experimental Investigation on the Influence of Wall-Flow Diesel Particulate Filter Parameters on Filter Performance. Journal of Engineering Thermophysics, 2008, 29（1）: 171-173

[7] Chen K, Martirosyan K S, Luss D. Temperature Gradients with a Soot layer During DPF Regeneration [J]. Chemical Engineering Science, 2011, 66: 2968-2973

[8] Triana A P, Johnson J H, Yang S L. An experimental and numerical study of the performance characteristics of the diesel oxidation catalyst in a continuously regenerating particulate filter [R]. SAE Paper, 2003

[9] Okubo M, Kuroki T, Yoshida K, et al. Continuous Regeneration of Ceramic Particulate Filter in Stationary Diesel Engine by Nonthermal-Plasma-Ozone Injection [J]. IEEE Transaction on Industry Applications, 2009, 45(5): 1568-1574

[10] Grundmann J, Müller S, Zahn R J, et al. Decomposition of soot by ozone and nitrogen oxides [J]. Topics in Catalysis, 2007, 42-43(1-4): 303-305

[11] Okubo M, Arita N, Kuroki T, et al. Total diesel emission control technology using ozone injection and plasma desorption [J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2008, 28(2): 173-187

[12] 韩文赫，蔡忆昔，李小华，等. DNTP 对柴油机 PM 质量粒径分布影响的实验研究 [J]. 工程热物理学报，2014，34(5)：985-988
HAN Wenhe, CAI Yixi, LI Xiaohua, et al. Experimental Investigation of the Influence of DNTP on Mass Size Distribution of Diesel Engine Particulate Matters [J]. Journal of Engineering Thermophysics, 2014, 34(5)：985-988

[13] 李康华，蔡忆昔，李小华，等. 水冷式低温等离子体反应器性能的试验研究[J]. 农业工程学报， 2012，28(22)：69-75
LI Kanghua, CAI Yixi, LI Xiaohua, et al. Experimental study on the performance of a water-cooled non-thermal plasma reactor [J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering, 2012, 28(22)：69-75

[14] Kogelschatz U, Eliasson B, Hirth M. Ozone Generation in From Oxygen and Air: Discharge physics and reaction Mechanisms [J]. Ozone: Science and Engineering, 1988, 10(4): 367-377

[15] 韩文赫，蔡忆昔，王军，等. 空气介质阻挡放电型间接低温等离子体系统性能实验分析 [J]. 高电压技术，2010，36（12）：3065-3069
HAN Wenhe, CAI YiXi, WANG Jun, et al. Experimental analysis on the character of air-fed indirect non-thermal plasma system using dielectric barrier discharge [J]. High Voltage Engineering, 2010, 36(12): 3065－3069

[16] Murtagh M J, Sherwood D L, Socha L S, et al. Development of a Diesel Particulate Filter Composition and Its Effect on Thermal Durability and Filtration Performance [R]. SAE Technical Paper, 1994-03-01, 1994